

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2002-343375
(43)Date of publication of application : 29.11.2002

(51)Int. Cl. H01M 8/02
H01M 8/10

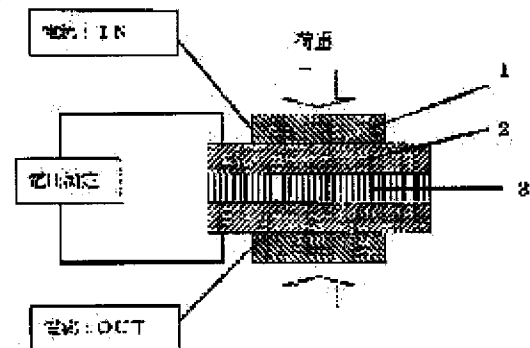
(21)Application number : 2001-150482 (71)Applicant : MITSUBISHI PLASTICS IND LTD
(22)Date of filing : 21.05.2001 (72)Inventor : MIYAGAWA MICHINARI

(54) SEPARATOR FOR FUEL CELL

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a separator for fuel cell which mainly uses a metal plate with small contact resistance to an electrode, has excellent erosion resistant property, and can be manufactured at relatively low cost.

SOLUTION: The separator for fuel cell is formed by burying a conductive filler into a synthetic resin layer of a metal lamination body, which is formed by coating the synthetic resin layer including electricity conducting agent at least on one surface of a metal base plate.



*** NOTICES ***

JPO and INPIT are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.**** shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

CLAIMS

[Claim(s)]

[Claim 1] A separator for fuel cells which covers a synthetic resin layer which mixed a conducting agent at least on one side of a metal substrate, and is further absorbed in a conductive filler under the surface of a synthetic resin layer.

[Claim 2]The separator for fuel cells according to claim 1, wherein a volume resistance value of said conductive filler is below 0.5-ohmcm.

[Claim 3]The separator for fuel cells according to claim 1 or 2 characterized by coming to choose said conductive filler out of carbon, metallic carbide, a metallic oxide, metal nitride, metal powder, and a metal fiber.

[Claim 4]A separator for fuel cells of claim 1 thru/or 3 characterized by coming to choose said metal substrate out of stainless steel, titanium, aluminum, copper, nickel, and steel given in any 1 paragraph.

[Claim 5]A separator for fuel cells of claim 1 thru/or 4 given in any 1 paragraph characterized by coming to choose said conducting agent out of carbon, metallic carbide, a metallic oxide, metal nitride, metal powder, and a metal fiber.

[Claim 6]A separator for fuel cells of claim 1 thru/or 5, wherein said synthetic resin layer consists of a fluoro-resin or fluorocarbon rubber given in any 1 paragraph.

[Claim 7]A plastic sheet which mixed a conducting agent is laid at least in one side of a metal substrate. A manufacturing method of a separator for fuel cells by which carrying out laminate integration of a metal substrate and the plastic sheet by a heat pressing method, and also laying a conductive filler on it, and a conductive filler being again absorbed by a heat pressing method subsequently.

[Translation done.]

*** NOTICES ***

JPO and INPIT are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.

2.*** shows the word which can not be translated.

3.In the drawings, any words are not translated.

DETAILED DESCRIPTION

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Field of the Invention]This invention relates to the separator for fuel cells, and it is provided between the single cells which adjoin in the fuel cell which carries out the plural laminates of the single cell, and constitutes it in detail. A fuel gas flow route and an oxidizing gas passage are formed between electrodes, and it is a separator for fuel cells for separating fuel gas and oxidizing gas, and is related with the separator for fuel cells excellent in especially a moldability, intensity, and corrosion resistance.

[0002]

[Description of the Prior Art]The separator which constitutes a fuel cell, especially a polymer electrolyte fuel cell contacts each electrode which pinches a solid-electrolyte membrane from both sides, is arranged, and forms distributed gas passages, such as fuel gas and oxidant gas, between these electrodes.

The thing excellent in the collecting performance which contacts an electrode and derives current is required.

[0003]Generally as a separator for fuel cells, it comprises metallic materials, such as precise carbon graphite carbon excellent in intensity and conductivity, stainless steel (SUS), titanium, aluminum.

[0004]

[Problem(s) to be Solved by the Invention]Usually, many heights for forming a gas passageway, a

slot, etc. are formed in the field which counters the electrode of the above-mentioned separator. Therefore, although high collecting performance is maintained also by prolonged use highly [electrical conductivity] in the separator which comprises above-mentioned precise carbon graphite, Since it is a very weak material, while it is not easy to machine cutting etc. that many heights and slots should be formed in the surface of a separator and process cost becomes high, there is a problem that mass production is difficult.

[0005]On the other hand, in the separator which comprises an above-mentioned metallic material, since it excels in intensity and ductility as compared with precise carbon graphite, and press working of sheet metal is possible for formation of many heights for forming a gas passageway, a slot, etc., there is an advantage that process cost is low and easy also for mass production. However, under the operating environment of a separator, the oxide film by corrosion is generated by the surface, and I am [such a metallic material] easy, and the contact resistance of the oxide film and electrode which were generated becomes large, and it has the problem of reducing the collecting performance of a separator.

[0006]then, the separator which consists of a metallic material excellent in processability — public funds — the material which coated the surface of the group board with noble metal materials, such as gold excellent in corrosion resistance, is examined. However, since such a material is very expensive, there is a problem that flexibility is missing.

[0007]The material which covered the resin layer which mixed the conducting agent at least on one side of the above-mentioned metal substrate is examined. However, when the resin layer which mixed the conducting agent is usually covered, there is a problem that the contact resistance of a resin layer and an electrode becomes large.

[0008]This invention is what solved the above-mentioned problem, and even if it covers the resin layer which mixed the conducting agent, its contact resistance with an electrode is small, is excellent in corrosion resistance, and it provides the separator for fuel cells which made the subject the metal substrate comparatively producible by low cost.

[0009]

[Means for Solving the Problem]A place which this invention finds out a separator for fuel cells which can cancel an above-mentioned problem, and is made into the gist covers a synthetic resin layer which mixed a conducting agent at least on one side of a metal substrate, and is in a separator for fuel cells further absorbed in a conductive filler under the surface of a synthetic resin layer. It includes coming to choose a conductive filler out of carbon, metallic carbide, a metallic oxide, metal nitride, metal powder, and a metal fiber, including that a volume resistance value of the above-mentioned conductive filler is below 0.5-ohmcm.

[0010]

[Embodiment of the Invention]Hereafter, this invention is explained in detail. As a metal substrate used with the separator for fuel cells of this invention, the sheet metal which consists of stainless steel, titanium, aluminum, copper, nickel, and steel can use it conveniently, and the range of thickness of 0.1 mm – 1.5 mm is desirable.

[0011]The synthetic resin layer which contains a conducting agent at least in one side of the above-mentioned metal substrate is covered with the separator for fuel cells of this invention, and a metal layered product is formed. As a raw material used for a synthetic resin layer, a fluoro-resin or fluorocarbon rubber can use it conveniently from a chemical-resistant point. Specifically PTFE (polytetrafluoroethylene), PFA (tetrafluoroethylene perfluoroalkyl vinyl ether copolymer), FEP (tetrafluoroethylene hexafluoropropylene copolymer), EPE (tetrafluoroethylene hexafluoropropylene perfluoroalkyl vinyl ether copolymer), ETFE (tetrafluoroethylene ethylenic copolymer), PCTFE (polychlorotrifluoroethylene resin), ECTFE (chlorotrifluoroethylene ethylenic copolymer), PVDF (polyvinylidene fluoride), PVF (polyvinyl fluoride), THV (tetrafluoroethylene hexafluoropropylene vinylidene fluoride copolymer), VDF-HFP (fluorination vinylidene-hexafluoropropylene copolymer), TFE-P (fluorination vinylidene-propylene copolymer), [0012]At least one or more kinds of the fluoro-resins or fluorocarbon rubbers which consist of fluorine-containing silicone series rubber, fluorine-containing vinyl ether system rubber, fluorine-containing phosphazene system rubber, and fluorine-containing thermoplastic elastomer can be used. PVDF, THV, VDF-HFP, and TFE-P which contain vinylidene fluoride from a point of a

moldability especially in the resin which illustrated [above-mentioned] are preferred.

[0013]It is necessary to mix a conducting agent to the synthetic resin layer which consists of the above-mentioned fluoro-resin or fluorocarbon rubber, and carbon, metallic carbide, a metallic oxide, metal nitride, metal powder, and a metal fiber can use it conveniently as a conducting agent.

[0014]As carbon, as black lead, carbon black, expanded graphite, carbon fiber, and metallic carbide, tungsten carbide, As silicon carbide, carbonized calcium, zirconium carbide, tantalum carbide, titanium carbide, niobium carbide, carbonization molybdenum, vanadium carbide, chromium carbide, hafnium carbide, and a metallic oxide, Titanium oxide, ruthenium oxide, indium oxide, tin oxide, a zinc oxide, As metal nitride, chromium nitride, aluminum nitride, molybdenum nitride, As zirconium nitride, tantalum nitride, titanium nitride, gallium nitride, niobium nitride, vanadium nitride, boron nitride, and metal powder, As titanium powder, nickel powder, ****, copper powder, aluminum powder, zinc dust, silver dust tantalum complications, niobium powder, and a metal fiber, iron textiles, copper textiles, and a stainless steel fiber can be illustrated. Especially in the above-mentioned conducting agent, since it excels in conductivity and acid resistance, metallic carbide can use it conveniently.

[0015]The mixing ratio of the conducting agent in a synthetic resin should just decide suitably that the volume resistivity of a resin layer will be 1 or less (based on JIS K 7194) ohm-cm, Usually, 40 % of the weight - 95% of the weight of the range is preferred among a synthetic resin, the mixing ratio is inferior to conductivity in volume resistivity exceeding 1ohm and cm at less than 40 % of the weight, and if 95 % of the weight is exceeded, shaping will become difficult easily.

[0016]The thickness of a synthetic resin layer has the preferred range of 10-300 micrometers, and it is easy to produce the problem that a separator becomes thick and the fuel cell by which the stack was carried out becomes large in less than 10 micrometers at that in which there are few anticorrosion effects to a metal substrate, and they exceed 300 micrometers.

[0017]A volume resistance value needs to be further absorbed in the synthetic resin layer of the metal layered product which covers a synthetic resin layer at least on one side of the metal substrate of the above-mentioned contents with heat pressing etc. in the conductive filler below 0.5-ohmcm. The volume resistance value of below 0.5-ohmcm (based on JIS K 7194) should just be 0.00001-0.1-ohmcm preferably, and metallic carbide can use the above-mentioned conductive filler conveniently. As metallic carbide, silicon carbide, tungsten carbide, titanium carbide, etc. are mentioned.

[0018]the mean particle diameter of a conductive filler -- the range of 0.1-20 micrometers -- the range of 0.3-15 micrometers is preferably good. There is a problem that it is hard to deal with particles finely, and the mean particle diameter of a conductive filler is inferior to productivity in them in less than 0.1 micrometer. If mean particle diameter exceeds 20 micrometers, a pinhole will occur at the time of devotion to a synthetic resin layer, and there is a problem that the acid resistance of a separator is inferior.

[0019]Although a conductive filler may be used as it is, it may be made slurry form using a solvent etc., or the surface treatment of it may be carried out by surface-active agent, a silane coupling agent, etc., and it may create and use a paint.

[0020]Although the manufacturing method in particular of the separator of this invention is not limited, the fluororesin sheet which consists of a presentation which was produced beforehand, and which was mentioned above is laid in one side or both sides of a metal substrate, After carrying out laminate integration by a heat pressing method, the method of laying a conductive filler and a conductive filler being absorbed in the fluororesin sheet surface by a heat pressing method further again is preferred from points, such as productivity. The method of producing a fluororesin sheet should just be based on the usual extrusion molding and roll diffusion bonding. What is necessary is just to also perform the conditions of a heat pressing method in usual press condition, cooking temperature [of 120 ** - 300 **], and pressure $2.9 \times 10^6 \text{ Pa}$ - a $9.8 \times 10^6 \text{ Pa}$ (30 kgf/cm^2 - 100 kgf/cm^2) grade. Hereafter, although an example is described, this invention is not limited to this.

[0021]

[Example] Fluoro-resin ("Sumitomo 3M, Inc." make THV220G) 15 weight section and conductive filler (product [made from tungsten carbide "Allied Material"] WC20) 85 weight section were mixed with the biaxial extrusion machine (extrusion machine temperature of 250 **). The 200-micrometer-thick conductive fluororesin sheet was created for the above-mentioned mixture in roll forming (roll temperature of 240 **). The volume resistance value of the obtained sheet was 0.1-ohmcm. The metal substrate used what formed a 20-micrometer etching layer for aluminum 5052 board (0.5 mm in thickness) by the electrolytic etching method, and laid it in order of the conductive fluororesin sheet / etching aluminum 5052 board / conductive fluororesin sheet, and laminate integration was carried out by heat pressing processing. Heat pressing conditions were performed in pressure 3.5×10^6 Pa (36 kgf/cm²) for the temperature of 200 **, and 10 minutes. The conductive filler beforehand slurred by ethanol was applied to one side of obtained resin and the metal layered product by the bar coating machine, and it fabricated by heat pressing processing. The conductive filler thriller-ized by ethanol was applied by the bar coating machine similarly on an another side side, and it fabricated by heat pressing processing. Each heat pressing condition was performed in pressure 3.5×10^6 Pa (36 kgf/cm²) for the temperature of 200 **, and 5 minutes. The conductive filler used the titanium carbide (mean particle diameter of 1.2 micrometers, volume resistance value 1×10^{-4} ohmcm) which came to hand from Allied Material. The total thickness of the obtained compound board was 0.86 mm. Using the above-mentioned layered product, press working of sheet metal was carried out, the gas passageway was formed again, and the separator for fuel cells was obtained. Press conditions were performed in pressure 1.8×10^7 Pa (180 kgf/cm²) for a room temperature and 1 minute.

[0022] The obtained separator for fuel cells had the good adhesive property of the fluororesin layer and aluminum board containing the fluororesin layer containing a conductive filler and a conducting agent and a conducting agent, and there was no exfoliation.

[0023] Contact resistance was measured using the obtained above-mentioned separator.

Evaluation of contact resistance was performed as follows. No.1 sample of drawing 2 showed the measurement result.

1. Measuring device ohm-meter : YMR-3 type (made by the Yamasaki Energy machine research institute company)

Load apparatus: YSR-8 type (made by the Yamasaki Energy machine research institute company)

Electrode: Two plates made from brass (an area of one square inch, mirror finish)

2. measuring condition method: -- 4 terminal method force current: -- 10 mA (exchange, 287 Hz)

open end child voltage: -- below 20-mV peak contact-load: -- 0.90×10^5 Pa 1.8×10^5 Pa 4.5×10^5 Pa 9.0×10^5 Pa 1.8×10^6 Pa carbon paper: -- TGP-H-090 (0.28 mm in thickness) by Toray Industries, Inc.

3. It measured with the measuring device shown in measuring method drawing 1.

[0024] The contact resistance value of the separator evaluated by the described method was shown in the graph of drawing 2. The separator (No.2) which carried out press formation of the channel with the conductive fluoride sheet / etching aluminum 5052 board / conductive fluoride sheet of the presentation of No.1 sample for comparison was obtained. The resin impregnation black lead G347B (No.3) by Tokai Carbon Co., Ltd. was also evaluated as a comparison sample.

[0025] Sample No.1 which covered the resin layer containing a conducting agent to the metal plate, and engrossed the conductive filler under the surface of a resin layer further as shown in the graph of drawing 2, compared with sample No.2 which covered the resin layer containing a conducting agent to the metal plate, the contact resistance value with the carbon paper used as an electrode material of a fuel cell was markedly alike, became small, and was a contact resistance value almost equivalent to resin impregnation black lead of No.3.

[0026]

[Effect of the Invention] As mentioned above, the separator for fuel cells of this invention has small contact resistance with an electrode, and the availability as an object for fuel cells which

can operate the long time are excellent in corrosion resistance and it can produce by low cost comparatively is large.

[Translation done.]

*** NOTICES ***

JPO and INPIT are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.*** shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

DESCRIPTION OF DRAWINGS

[Brief Description of the Drawings]

[Drawing 1]The schematic diagram of the device in which the measuring method of contact resistance is shown.

[Drawing 2]The graph which shows the relation between contact load and a contact resistance value.

[Description of Notations]

- 1: The electrode made from brass
- 2: Carbon paper
- 3: Separator

[Translation done.]

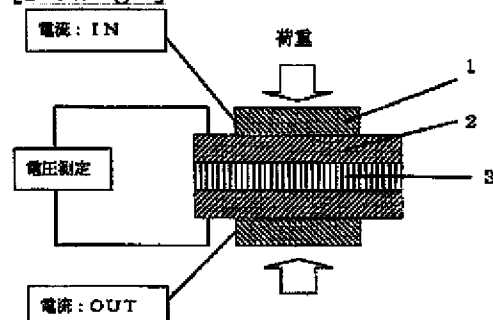
*** NOTICES ***

JPO and INPIT are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

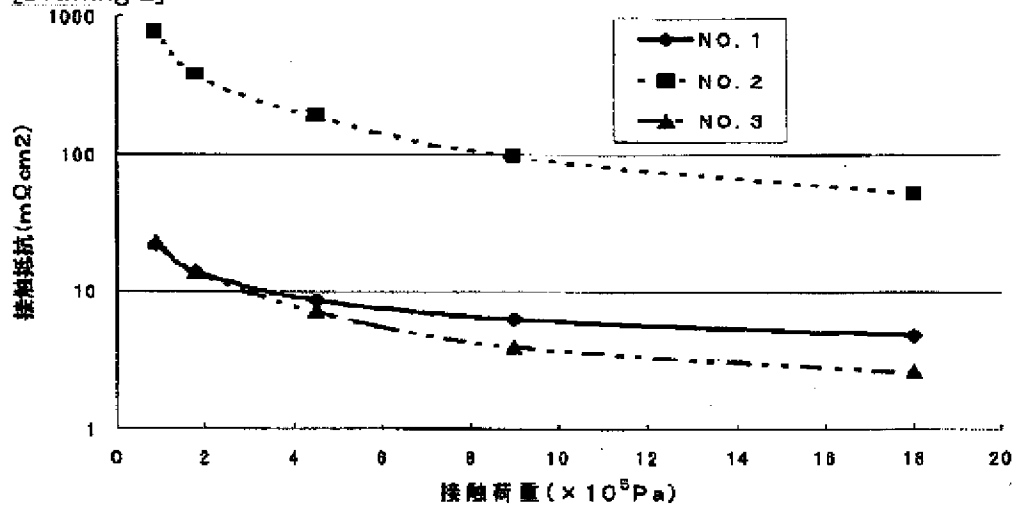
- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.*** shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

DRAWINGS

[Drawing 1]



[Drawing 2]



[Translation done.]

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号
特開2002-343375
(P2002-343375A)

(43) 公開日 平成14年11月29日 (2002. 11. 29)

(51) Int.Cl.⁷

識別記号

F I

テーマコード (参考)

H 0 1 M 8/02
8/10

H 0 1 M 8/02
8/10

B 5 H 0 2 6

審査請求 未請求 請求項の数7 O L (全 5 頁)

(21) 出願番号 特願2001-150482(P2001-150482)

(22) 出願日 平成13年5月21日 (2001. 5. 21)

(71) 出願人 000006172

三菱樹脂株式会社

東京都千代田区丸の内2丁目5番2号

(72) 発明者 宮川 倫成

神奈川県平塚市真土2480番地 三菱樹脂株

式会社平塚工場内

Fターム(参考) 5H026 AA06 BB02 BB04 CC03 CX02

EE02 EE05 EE08 EE12

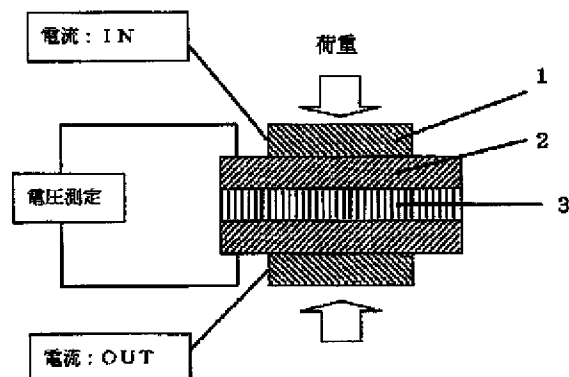
EE19 HH06

(54) 【発明の名称】 燃料電池用セパレータ

(57) 【要約】

【課題】 電極との接触抵抗が小さく、耐食性に優れ、比較的低コストで生産可能な金属基板を主体とした燃料電池用セパレータを提供する。

【解決手段】 金属基板の少なくとも片面に導電剤を含む合成樹脂層を被覆した金属積層体の合成樹脂層に導電性フィラーを没入してなる燃料電池用セパレータ。



【特許請求の範囲】

【請求項1】 金属基板の少なくとも片面に導電剤を混合した合成樹脂層を被覆し、さらに合成樹脂層の表面下に導電性フィラーを没入してなる燃料電池用セバレータ。

【請求項2】 前記導電性フィラーの体積抵抗値が0.5Ωcm以下であることを特徴とする請求項1記載の燃料電池用セバレータ。

【請求項3】 前記導電性フィラーが、カーボン、金属炭化物、金属酸化物、金属窒化物、金属粉末及び金属繊維から選ばれてなることを特徴とする請求項1又は2記載の燃料電池用セバレータ。

【請求項4】 前記金属基板がステンレス鋼、チタン、アルミニウム、銅、ニッケル、及び鋼から選ばれてなることを特徴とする請求項1乃至3のいずれか1項記載の燃料電池用セバレータ。

【請求項5】 前記導電剤が、カーボン、金属炭化物、金属酸化物、金属窒化物、金属粉末及び金属繊維から選ばれてなることを特徴とする請求項1乃至4のいずれか1項記載の燃料電池用セバレータ。

【請求項6】 前記合成樹脂層がフッ素樹脂又はフッ素ゴムからなることを特徴とする請求項1乃至5のいずれか1項記載の燃料電池用セバレータ。

【請求項7】 金属基板の少なくとも片面に導電剤を混合した合成樹脂シートを載置し、熱プレス法により金属基板と合成樹脂シートを積層一体化し、更にその上に導電性フィラーを載置し、ついで再度熱プレス法により導電性フィラーを没入することを特徴とする燃料電池用セバレータの製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は燃料電池用セバレータに係り、詳しくは単セルを複数積層して構成する燃料電池において隣接する単セル間に設けられ、電極との間で燃料ガス流路及び酸化ガス流路を形成すると共に燃料ガスと酸化ガスとを隔てるための燃料電池用セバレータであって、特に成形性、強度、耐食性に優れた燃料電池用セバレータに関する。

【0002】

【従来の技術】燃料電池、特に固体高分子型燃料電池を構成するセバレータは、固体電解質膜を両側から挟持する各電極に接触して配置されて、該電極との間に燃料ガス、酸化剤ガス等の供給ガス通路を形成するものであり、電極と接触して電流を導出する集電性能に優れたものが要求される。

【0003】一般に燃料電池用セバレータとしては、強度、導電性に優れた緻密カーボングラファイトカーボンや、ステンレス鋼(SUS)、チタン、アルミニウム等の金属材料から構成されている。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】通常、上記セバレータの電極に対向する面にはガス流路を形成するための多数の突起部、溝部等が形成される。従って、上記の緻密カーボングラファイトにて構成されるセバレータでは、電気伝導性が高く、かつ長期間の使用によっても高い集電性能が維持されるが、非常に脆い材料であることからセバレータの表面に多数の突起部や溝部を形成すべく切削加工等の機械加工を施すことは容易ではなく加工コストが高くなるとともに量産が困難であるという問題がある。

【0005】一方、上記金属材料にて構成されるセバレータでは、緻密カーボングラファイトに比較して強度、延性に優れていることから、ガス流路を形成するための多数の突起部、溝部等の形成はプレス加工が可能なため加工コストが低く量産も容易であるという利点がある。しかしながら、このような金属材料はセバレータの使用環境下では、その表面に腐食による酸化膜が生成され易く、生成された酸化膜と電極との接触抵抗が大きくなり、セバレータの集電性能を低下させるという問題がある。

【0006】そこで、加工性に優れた金属材料からなるセバレータ用金属基板の表面に、耐食性に優れた金等の貴金属材料をコーティングした材料が検討されている。しかしながら、このような材料は極めて高価なために汎用性に欠けるという問題がある。

【0007】さらに、上記金属基板の少なくとも片面に導電剤を混合した樹脂層を被覆した材料が検討されている。しかし、通常、導電剤を混合した樹脂層を被覆すると樹脂層と電極の接触抵抗が大きくなるという問題がある。

【0008】本発明は上記問題を解決したもので、導電剤を混合した樹脂層を被覆しても電極との接触抵抗が小さく、耐食性に優れ、比較的低コストで生産可能な金属基板を主体とした燃料電池用セバレータを提供するものである。

【0009】

【課題を解決するための手段】本発明は上述の問題点を解消できる燃料電池用セバレータを見出したものであり、その要旨とするところは、金属基板の少なくとも片面に導電剤を混合した合成樹脂層を被覆し、さらに合成樹脂層の表面下に導電性フィラーを没入してなる燃料電池用セバレータにある。上記導電性フィラーの体積抵抗値が0.5Ωcm以下であることを含み、また、導電性フィラーがカーボン、金属炭化物、金属酸化物、金属窒化物、金属粉末及び金属繊維から選ばれてなることを含んでいる。

【0010】

【発明の実施の形態】以下、本発明を詳細に説明する。本発明の燃料電池用セバレータで使用する金属基板としては、ステンレス鋼、チタン、アルミニウム、銅、ニッ

ケル、銅からなる薄板が好適に使用でき、厚みは0.1 mm～1.5 mmの範囲が望ましい。

【0011】本発明の燃料電池用セバレータでは上記金属基板の少なくとも片面に導電剤を含む合成樹脂層を被覆して金属積層体を形成する。合成樹脂層に使用する原料としては耐薬品性の点からフッ素樹脂又はフッ素ゴムが好適に使用できる。具体的には、PTFE（ポリテトラフルオロエチレン）、PFA（テトラフルオロエチレン-パーフルオロアルキルビニルエーテル共重合体）、FEP（テトラフルオロエチレン-ヘキサフルオロプロピレン共重合体）、EPE（テトラフルオロエチレン-ヘキサフルオロプロピレン-パーフルオロアルキルビニルエーテル共重合体）、ETFE（テトラフルオロエチレン-エチレン共重合体）、PCTFE（ポリクロロトリフルオロエチレン）、ECTFE（クロロトリフルオロエチレン-エチレン共重合体）、PVDF（ポリフッ化ビニリデン）、PVF（ポリビニルフルオライド）、THV（テトラフルオロエチレン-ヘキサフルオロプロピレン-フッ化ビニリデン共重合体）、VDF-HFP（フッ化ビニリデン-ヘキサフルオロプロピレン共重合体）、TFE-P（フッ化ビニリデン-プロピレン共重合体）、

【0012】含フッ素シリコーン系ゴム、含フッ素ビニルエーテル系ゴム、含フッ素フォスファゼン系ゴム、含フッ素熱可塑性エラストマーからなる少なくとも1種類以上のフッ素樹脂又はフッ素ゴムが使用できる。上記例示した樹脂では、成形性の点から特にフッ化ビニリデンを含むPVDF、THV、VDF-HFP及びTFE-Pが好ましい。

【0013】上記フッ素樹脂又はフッ素ゴム等からなる合成樹脂層には導電剤を混合する必要がある、導電剤としては、カーボン、金属炭化物、金属酸化物、金属窒化物、金属粉末及び金属繊維が好適に使用できる。

【0014】カーボンとしては黒鉛、カーボンブラック、膨張黒鉛、炭素繊維、金属炭化物としては炭化タングステン、炭化珪素、炭化カルシウム、炭化ジルコニウム、炭化タンタル、炭化チタン、炭化ニオブ、炭化モリブデン、炭化バナジウム、炭化クロム、炭化ハフニウム、金属酸化物としては、酸化チタン、酸化ルテニウム、酸化インジウム、酸化錫、酸化亜鉛、金属窒化物としては窒化クロム、窒化アルミニウム、窒化モリブデン、窒化ジルコニウム、窒化タンタル、窒化チタン、窒化ガリウム、窒化ニオブ、窒化バナジウム、窒化ホウ素、金属粉末としては、チタン粉、ニッケル粉、錫粉、銅粉、アルミ粉、亜鉛粉、銀粉タンタル粉、ニオブ粉、金属繊維としては、鉄繊維、銅繊維、ステンレス繊維が例示できる。上記の導電剤の中では、特に導電性、耐酸性に優れていることから金属炭化物が好適に使用できる。

【0015】合成樹脂中の導電剤の混合比率は樹脂層の

体積抵抗率が $1\Omega\cdot\text{cm}$ 以下（JIS K 7194による）になるように適宜決めれば良く、通常、合成樹脂中40重量%～95重量%の範囲が好ましく、混合比率が40重量%未満では体積抵抗率が $1\Omega\cdot\text{cm}$ を越えて導電性に劣り、95重量%を越えると成形が困難になり易い。

【0016】合成樹脂層の厚みは10～300 μm の範囲が好ましく、10 μm 未満では金属基板への耐食効果が少なく、300 μm を越えるものではセバレータが厚くなりスタックされた燃料電池が大きくなるという問題が生じ易い。

【0017】上記内容の金属基板の少なくとも片面に合成樹脂層を被覆してなる金属積層体の合成樹脂層に、更に体積抵抗値が $0.5\Omega\cdot\text{cm}$ 以下の導電性フィラーを熱プレス等により没入する必要がある。上記導電性フィラーは、体積抵抗値が $0.5\Omega\cdot\text{cm}$ 以下（JIS K 7194による）、好ましくは $0.00001\sim 0.1\Omega\cdot\text{cm}$ であれば良く、金属炭化物が好適に使用できる。金属炭化物としては、炭化珪素、炭化タングステン、炭化チタン等が挙げられる。

【0018】導電性フィラーの平均粒径は0.1～20 μm の範囲、好ましくは0.3～15 μm の範囲が良い。導電性フィラーの平均粒径が0.1 μm 未満では、粒子が細かく取り扱いにくく、生産性に劣るという問題がある。また平均粒径が20 μm を越えると合成樹脂層への没入時にピンホールが発生し、セバレータの耐酸性が劣るという問題がある。

【0019】導電性フィラーはそのまま使用しても良いが、溶剤等を用いスラリー状にしたり、界面活性剤やシランカップリング剤等で表面処理し塗料を作成して使用しても良い。

【0020】本発明のセバレータの製造方法は特に限定されないが、予め製膜された上述した組成からなるフッ素樹脂シートを金属基板の片面又は両面に載置し、熱プレス法で積層一体化した後、導電性フィラーを載置しさらに再度熱プレス法により導電性フィラーをフッ素樹脂シート表面に没入する方法が生産性等の点から好ましい。フッ素樹脂シートの製膜法は通常の押出成形、ロール成形法によればよく、熱プレス法の条件も通常のプレス条件、加熱温度 $120^{\circ}\text{C}\sim 300^{\circ}\text{C}$ 、圧力 $2.9\times 10^8\text{ Pa}\sim 9.8\times 10^8\text{ Pa}$ （ $30\text{ kgf/cm}^2\sim 100\text{ kgf/cm}^2$ ）程度にて行なえばよい。以下、実施例について説明するが、本発明はこれに限定されるものではない。

【0021】

【実施例】フッ素樹脂（「住友スリーエム（株）」製 THV220G）15重量部と導電性フィラー（炭化タングステン 「（株）アライドマテリアル」製 WC20）85重量部を2軸押出機（押出機温度 250°C ）にて混合した。上記混合物をロール成形（ロール温度 24

0℃)にて厚さ200 μ mの導電性フッ素樹脂シートを作成した。得られたシートの体積抵抗値は0.1 Ω cmであった。金属基板はアルミ5052板(厚み0.5mm)を電解エッチング法にて20 μ mのエッチング層を形成したものを使用し、導電性フッ素樹脂シート/エッチングアルミ5052板/導電性フッ素樹脂シートの順に載置し、熱プレス加工にて積層一体化した。熱プレス条件は温度200℃、10分、圧力3.5 $\times 10^6$ Pa (36kgf/cm²)にて行った。得られた樹脂・金属積層体の片面に、予めエタノールでスラリー化した導電性フィラーをバーコーターで塗布し、熱プレス加工にて成形した。更に他方面上にも同じように、エタノールでスラリー化した導電性フィラーをバーコーターで塗布し、熱プレス加工にて成形した。熱プレス条件はいずれも温度200℃、5分、圧力3.5 $\times 10^6$ Pa (36kgf/cm²)にて行った。導電性フィラーは(株)アライドマテリアルより入手した炭化チタン(平均粒径1.2 μ m、体積抵抗値1 $\times 10^{-4}$ Ω cm)を使用した。得られた複合板の総厚みは0.86mmであった。上記積層体を用い、再度、プレス加工してガス流路を形成し燃料電池用セバレータを得た。プレス条件は室温、1分、圧力1.8 $\times 10^7$ Pa (180kgf/cm²)にて行った。

【0022】得られた燃料電池用セバレータは導電性フィラーと導電剤を含むフッ素樹脂層及び導電剤を含むフッ素樹脂層とアルミ板との接着性が良好で剥離等がなかった。

【0023】得られた上記のセバレータを用いて接触抵抗を測定した。接触抵抗の評価は以下のように行った。測定結果を図2のNo. 1サンプルで示した。

1. 測定装置

抵抗計: YMR-3型(株)山崎精機研究所社製)
 負荷装置: YSR-8型(株)山崎精機研究所社製)
 電極: 真鍮製平板2枚(面積1平方インチ、鏡面仕上げ)

2. 測定条件

方法: 4端子法

*印加電流: 10mA(交流、287Hz)

開放端子電圧: 20mVピーク以下

接触荷重: 0.90 $\times 10^5$ Pa

1.8 $\times 10^5$ Pa

4.5 $\times 10^5$ Pa

9.0 $\times 10^5$ Pa

18 $\times 10^5$ Pa

カーボンペーパー: 東レ社製TGP-H-090(厚み0.28mm)

3. 測定方法

図1に示した測定装置により測定した。

【0024】上記方法で評価したセバレータの接触抵抗値を図2のグラフに示した。比較のためにNo. 1サンプルの同組成の導電性フッ素シート/エッチングアルミ5052板/導電性フッ素シートで流路をプレス形成したセバレータ(No. 2)を得た。また、比較サンプルとして東海カーボン社製樹脂含浸黒鉛G347B(No. 3)も評価した。

【0025】図2のグラフに示す通り、導電剤を含む樹脂層を金属板に被覆し、さらに樹脂層の表面下に導電性フィラーを没入させたサンプルNo. 1は、導電剤を含む樹脂層を金属板に被覆したサンプルNo. 2に比べ、燃料電池の電極材として使用されるカーボンペーパーとの接触抵抗値が格段に小さくなり、No. 3の樹脂含浸黒鉛とはほぼ同等の接触抵抗値であった。

【0026】

【発明の効果】上述したように、本発明の燃料電池用セバレータは電極との接触抵抗が小さく、耐食性に優れ、比較的低コストで生産可能なことから、長時間の運転が可能な燃料電池用としての利用性が大きい。

【図面の簡単な説明】

【図1】接触抵抗の測定方法を示す装置の概略図。

【図2】接触荷重と接触抵抗値の関係を示すグラフ。

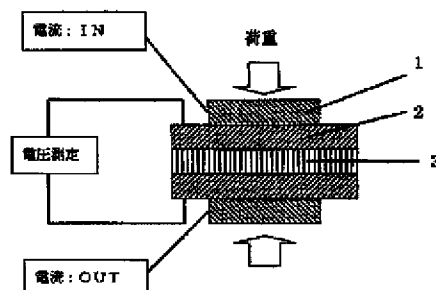
【符号の説明】

1: 真鍮製電極

2: カーボンペーパー

* 3: セバレータ

【図1】



【図2】

